

비상시 환경방사능 모니터링을 위한 공기부유진 시료의 감마선에너지 스펙트럼에 대한 핵종판별

변종인* · 윤석원* · 최희열† · 임성아*† · 이동명*† · 윤주용*†

*과학기술연합대학원대학교 · †한국원자력안전기술원

2009년 6월 12일 접수 / 2009년 8월 3일 1차수정 / 2009년 9월 3일 2차수정 / 2009년 9월 11일 채택

감마선분광분석법을 이용하여 비상시 환경방사능 모니터링을 수행할 경우 스펙트럼 측정시 해당 시료의 종류에 따른 백그라운드 자료 확보와 이를 활용한 체계적인 핵종확인 과정이 선행되어야 한다. 비상시 환경방사능 모니터링을 고려하여 24시간 동안 포집 후 회화시킨 공기부유진 시료를 HPGe 감마선분광분석 시스템으로 계속하여 감마선에너지 스펙트럼을 얻었으며, 그 스펙트럼에서 보이는 피크들의 핵종을 판별하기 위해 두 가지 방법 - 1) 반감기 추정 2) 핵자료를 이용한 축차우연동시합성피크 확인 - 으로 접근하였다. 그 결과로서 공기부유진의 감마선에너지스펙트럼에 대한 핵종판별결과 자료를 산출하였다.

중심어: 공기부유진, 감마선 에너지 스펙트럼, 핵종판별

1. 서론

비상시 환경방사능 모니터링은 선원향으로부터 환경으로 누출되고 있는 또는 누출된 선원의 양을 결정하는 것을 주요한 목적으로 한다[1]. 비상시 환경방사능 모니터링 방법 중 공기부유진을 채취하여 감마선분광분석을 수행하는 방법은 대기 중으로 빠르게 확산될 수 있는 인공방사성동위원소들을 신속하게 계측하고, 확산방향을 예측할 수 있는 정보를 제공한다. 이러한 비상시 환경방사능 모니터링을 위해서는 시료의 신속한 채취, 계측, 그리고 감마선에너지스펙트럼에 대한 신속하고 정확한 핵종판별이 수행되어야 한다. 그러나 감마선 에너지스펙트럼 중 피크들에 대한 핵종판별은 분석자의 분석능력에 따라 좌우될 수 있으며, 분석프로그램에 전적으로 의존하는 경우 오판할 수 있는 문제점을 갖고 있다. 그러므로 비상모니터링의 경우에 수행될 시료채취, 전처리, 계측 및 분석을 통하여 백그라운드 감마선에너지스펙트럼에 대한 사전조사가 필요하며, 모니터링 네트워크를 구축하고 있는 분석자들 상호간에 충분한 정보를 공유해야 한다. 이미 INEEL (Idaho National Engineering & Environmental Laboratory, USA)의 Gamma-Ray Spectrometry Center에서는 Ge, Si 반도체 검출기와 NaI 검출기를 이용하여 핵종에 따른 감마선에너지스펙트럼에 대한 데이터 베이스를 구축하고 있으며, 웹사이트를 통해 자료들을 공개하고 있다. 그러나 비상시 채취된 환경시료에 대한 감마선 에

너지 스펙트럼은 시료채취, 전처리 및 계측 방법에 따라 동일한 핵종을 포함하더라도 단반감기의 딸핵종들이나 축차우연동시합성효과에 의해 상이한 피크들이 계측될 수 있다. 그러므로 효과적인 비상시 환경방사능 모니터링을 위해서는 환경시료의 종류 및 상황에 따른 감마선 에너지 스펙트럼이 필요하다[1-3].

본 연구의 목적은 비상시 환경방사능 모니터링 감시주기를 단축할 경우 짧은 반감기의 자연방사성 핵종을 체계적으로 확인하는 방법을 확립하여 핵종판별의 오류를 최소화하기 위한 것이다. 본 논문에서는 핵종판별을 위한 접근방법과 공기부유진의 감마선 에너지 스펙트럼의 핵종판별결과를 소개한다.

2. 실험 및 방법

공기부유진의 채취, 전처리 및 계측은 비상시 환경방사능 모니터링을 고려하여 수행하였으며, 측정된 감마선 에너지스펙트럼의 모든 피크에 대한 핵종을 확인하였다.

한국원자력안전기술원내 M.P.(Monitoring Post)에 설치된 고체적공기채취기(HVP-35000AFC/230)에 공기채취용 여과지(Whatman 41(5A), 20.3 × 25.4 cm²)를 장착하여 24시간동안 공기부유진을 포집하였다. 포집후 회수된 여과지는 4시간 동안 회화하여 원통형 용기(φ 4.8×5 cm³)에 충전 하였다. 준비된 시료는 상대효율 30%의 HPGe 감마선 분광분석 시스템을 이용하여 계속하였다. Fig. 1은 본 연구에 사용된 고체적공기채취기와 HPGe 감

책임저자: 윤주용, k153yjj@kins.re.kr, 과학기술연합대학원대학교 대전광역시 유성구 과학로 34

마선분광분석 시스템을 보여준다. 얻어진 감마선 에너지 스펙트럼은 먼저 잘 알려진 즉, 공기부유진 시료에서 일반적으로 계측될 수 있는 핵종을 선별하였다. 이때 사용되고 있는 계측시스템의 백그라운드(자연핵종, 우주선 기인 유도방사성핵종에 의한 기여분)에 대한 조사가 선행되어 있어야 측정된 감마선 에너지스펙트럼으로부터 해당 핵종을 효과적으로 확인할 수 있다. 백그라운드를 제외한 피이크에 대해서는 샘플에 대한 계측효율을 고려하여 핵자료 등을 이용하여 핵종을 판별하였다. 1 차적

으로 판별되지 않은 피이크에 대해서는 감마선 에너지 피이크에 대한 명확한 판별을 위해 가능성 있는 단일에너지 핵종에 대한 반감기를 이용한 추정방법(방법 1) 과 스펙트럼 내 존재하는 핵종들에 의해 생성될 수 있는 동시합성(coincidence summing) 또는 단일 및 이중 이탈 피이크(single and double escape peaks)를 고려하는 이른바 핵자료를 이용한 방법(방법 2)을 병행하였다. Fig. 2는 일반적으로 핵종판별을 위한 순서도를 보여준다.

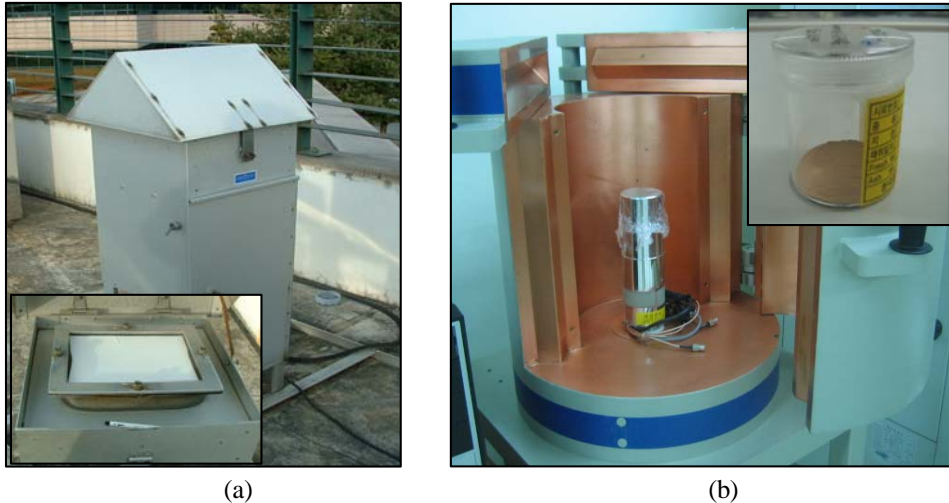


Fig. 1. A high volume air sampler installed at the monitoring post in the Korea Institute of Nuclear Safety (a) and the HPGe detector system with an air sample in the U8 vial (b).

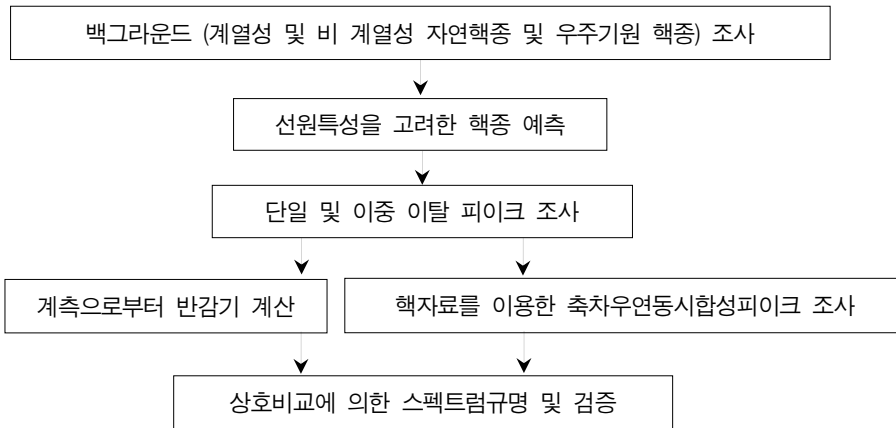


Fig. 2. Algorithm for nuclide identification of gamma ray energy spectra.

2.1 방법 1 - 반감기를 이용한 핵종판별

첫 번째 방법으로써, 미확인 피이크의 에너지대에 대한 피이크 계수를 이용하여 반감기를 역으로 계산하여 핵자료에서 보여주는 핵종들을 선별하였다. 반감기는 일반적으로 분할 계측하여 계산되지만 본 연구에서는 총 계측시간을 80,000초로 두고 총 계측시간내의 임의의 시점에서 중간 저장하여 계측시간동안의 핵종붕괴를 보정하여 계산하였다. 이 방법을 사용한 이유는 기존의 계측방법을

유지하면서 동시에 한번의 계측으로 단반감기 핵종을 확인해야 하기 때문이다. 식 (1)은 중간저장을 이용하여 반감기를 계산하기 위한 관계식이다.

$$N_{t_1} = N_0 \int_{t_0}^{t_1} e^{-\lambda t} dt$$

$$N_{t_2} = N_0 \int_{t_0}^{t_2} e^{-\lambda t} dt$$

$$N_{t_1}/N_{t_2} = \left(\int_{t_0}^{t_1} e^{-\lambda t} dt \right) / \left(\int_{t_0}^{t_2} e^{-\lambda t} dt \right) = (1 - e^{-\lambda t_1}) / (1 - e^{-\lambda t_2})$$

$$= (1 - 0.5^{t_1/T_{1/2}}) / (1 - 0.5^{t_2/T_{1/2}}) \tag{1}$$

이때 t_0, t_1, t_2 는 계측시간, N_0, N_{t_1}, N_{t_2} 는 각 시간에 대한 계수이다. 식 (1)에서 N_{t_1}/N_{t_2} 은 계측에 의해 결정되어지며, 우항에 의해 1차 및 2차 계측시간에 따른 계측시간대 반감기 곡선을 얻을 수 있다. 총 계측 시간(t_2)을 80,000초로 정할 경우 식 (1)에서의 적절한 중간저장 시점(t_1)을 결정해야한다. Fig. 3은 t_1 에 따른 반감기 곡선을 보여주며, t_1 이 커질수록 N_{t_1}/N_{t_2} 의 범위가 작아지므로 반감기 결정에 대한 정확밀도가 저하된다. 따라서 최적의 t_1 은 가능한 높은 N_{t_1} 을 얻으면서 가능한 작아야 한다. 또한 Table 1에서 보이는 것과 같이 80,000초를 t_2 로 결정할 경우 t_1 에 따라 결정가능한 반감기의 최소값과 최대값이 달라지며, 그 값들은 분할되는 시점에 따른 계수 차이에 의존하는 것을 확인할 수 있다.

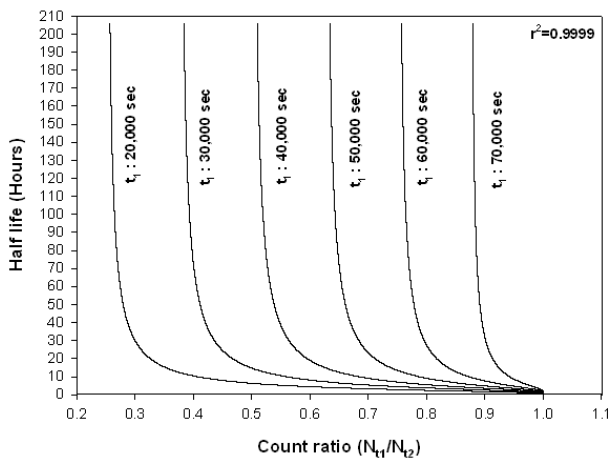


Fig. 3. Half life as the variation of count ratio (N_{t_1}/N_{t_2}) at different 't1'.

Table 1. The Half Life Calculation Results for Unidentified Peaks.

Energy (keV)	Count Ratio (N_{t_1}/N_{t_2})	u_R	Half life (hrs)	$U_{T_{1/2}}$ (hrs)
152	0.62	0.19	6.4	4.4
162	0.31	0.25	* > 156	
164	0.57	0.20	7.8	7.0
375	0.46	0.11	15	14.1
377	0.56	0.08	8.1	3.0
387	0.54	0.17	9.0	7.7
415	0.46	0.12	15	16.1
658	0.55	0.14	8.5	5.7

* 최대허용가능범위 이상의 반감기

Table 2. Upper and Lower Limits of Half Life according to the Time Separation.

t_1 (sec)	t_2 (sec)	Upper limit (day)		Lower limit (min)	
		Half life (Approximately)	N_{t_1}/N_{t_2}	Half life (Approximately)	N_{t_1}/N_{t_2}
20,000	80,000	4.06	0.26	43	1.00
30,000	80,000	7.55	0.38	65	1.00
40,000	80,000	5.35	0.51	87	1.00
50,000	80,000	7.49	0.63	108	1.00
60,000	80,000	3.96	0.76	135	1.00
70,000	80,000	3.43	0.88	177	1.00

본 연구에서 1차 스펙트럼이 생성된 시점(t_1)은 27,502 초이며, 이때의 결정 가능한 최소반감기는 약 58 분이며 최대반감기는 약 6.48 일이다. R 을 N_{t_1}/N_{t_2} 이라고 할 때, 피팅함수는 $T_{1/2} = 1/(a + bR)$ 이다. 이때, a 와 b 는 매개변수로서 각각 $-3.25 \times 10^{-3} \pm 3.14 \times 10^{-7}$, $9.46 \times 10^{-3} \pm 8.85 \times 10^{-7}$ 이었으며, $r^2 = 0.9999$ 를 보였다. Fig. 3에서 보이는 것과 같이 반감기와 계수비가 지수함수적으로 증감하므로 반감기에 대한 수치를 정밀하게 두어야 한다. 따라서 반감기 단위는 분단위로 결정하였다. 이렇게 결정된 반감기 계산식을 이용하여 핵자료의 핵종들을 선별하기 위해 스펙트럼상의 허용 에너지 범위와 계산된 반감기의 표준불확도 범위를 고려하여 핵자료에서 확인할 수 있는 핵종들의 반감기와 비교하였다. 적용범위를 결정하기 위한 불확도($U_{T_{1/2}}$)는 매개변수의 불확도를 u_i 로 두었을 때, 불확도 전파의 원리에 의해 유도된 식 (2)를 이용하여 계산하였다.

$$U_{T_{1/2}} = \frac{\sqrt{b^2 R^2 \left(\left(\frac{u_b}{b} \right)^2 + \left(\frac{u_R}{R} \right)^2 \right) + u_a^2}}{(a + bR)^2} \tag{2}$$

이때, u_R 의 불확도 계산은 보수적인 $U_{T_{1/2}}$ 의 불확도 산출을 위해 N_{t_1} 과 N_{t_2} 를 상관관계가 없는 독립변수로 처리하였다.

2.2 방법 2 - 핵자료를 이용한 축차우연동시합성 피이크 판별

이 방법은 첫 번째 방법과 함께 상호보완 될 수 있는 방법이다. 축차우연동시합성피이크는 축차천이 되는 핵종에서 γ -ray와 γ -ray 그리고 γ -ray와 내부전환전자에 의해 발생하는 X-ray 간의 천이시간(decay time)이 검출기 전치증폭기의 분해시간 보다 짧고 두 감마선이 동시(분해 시간내)에 계수되어 두 에너지의 합에 준하는 감마선에너지 피이크를 보이게 된다. 붕괴형식과 감마천이 붕괴시간을 고려하여 축차우연동시계수합성에 의한 피이크를 선별할 수 있으며, 스펙트럼에서 비교적 높은 계수율을 보이는 ^{220}Rn 의 딸핵종인 ^{212}Pb 와 ^{208}Tl 에 의해 발생될 수 있는 축차우연동시합성 피이크들을 조사하였다. 이때, 적용된 핵자료는 "Table Of Isotopes"[4]이다.

3. 결과 및 논의

1차적으로 공기부유진 시료에서 생성될 수 있는 선원이 분명한 피이크에 대하여 핵종판별을 실시한 결과는 Fig. 4의 스펙트럼과 같으며, 공기중 라돈 자핵종들에 의한 피이크들이 상대적으로 큰 계수를 보이고 있다. 이때의 미확인 피이크는 152 keV, 162 keV, 164 keV, 375 keV, 377 keV, 387 keV, 415 keV와 658 keV의 에너지대이며 위에서 소개된 두 가지 방법에 의한 결과는 다음과 같다.

3.1 미확인 피이크에 대한 반감기 계산결과

Table 1은 1차로 핵자료에 의해 판별되지 않은 핵종에 대하여 반감기를 계산한 결과를 보여준다. 미확인 피이크의 반감기 추정을 위해 1,690개의 방사성동위원소들과 32,319개의 감마선 에너지 정보를 포함하고 있는 프로그램(Aptec 7.04)의 'master.lib'를 이용하였다. 'master.lib'는 BNL (Brookhaven National Laboratory)의 NNDC (Nuclear National Data Center)에서 제공되는 핵자료를 근거로 작성된 감마선 에너지 스펙트럼 분석용 라이브러리 파일이다. Table 1의 결과를 이용하여 주어진 불확도 범위내의 반감기와 관심대상 에너지대의 감마선을 방출할 수 있는 핵종을 동시에 만족하는 선원들을 선별한 결과는 Table 3의 2차 선별핵종열에서 보여준다. 2차 선별 핵종을 위한 에너지 허용한계(energy tolerance)는 1 keV로 두었다. 또한, 2차 선별된 핵종 중 다른 에너지대의 감마선방출율과 에너지대 계측효율을 고려하여 감마선에너지 피이크를 스펙트럼 상에서 조사한 결과는 Table 3의

3차 선별 핵종열에서 보이는 것처럼 만족되는 핵종이 없었다. 따라서 반감기를 이용한 핵종선별 결과 적용된 라이브러리 수준에서는 인공동위원소에 의한 피이크가 아닌 것으로 평가되었다. 따라서 미확인 피이크들은 스펙트럼 중 1차로 판별된 핵종들에 의해 생성된 것을 수치적으로 추정할 수 있었다.

Table 3. The Nuclide Identification Results for Unidentified Peaks Using Half-life Calculation.

Energy (keV)	Nuclides by 2nd identification (Classification within the uncertainty range of the calculated half life)	Nuclides by 3rd identification (by check for multi-peaks)
152	¹⁰⁵ Ru, ¹⁸⁶ Pt, ²²⁴ Ac, ²⁵⁴ Fm, ¹⁹⁷ Tl	None
162	-	-
164	¹⁷⁷ Yb, ¹⁵⁵ Ho, ¹⁶⁴ Yb, ¹⁶³ Er, ²²⁴ Ac, ¹⁸⁵ Ta, ¹⁴⁹ Tb.	None
375	¹⁵¹ Pm	None
377	¹²⁷ Cs, ²⁵¹ Fm, ²⁴⁵ Pu, ^{111m} Pd, ⁵² Fe	None
387	^{71m} Zn, ¹⁵⁸ Er, ¹⁹¹ Au, ⁹³ Y, ^{87m} Sr, ¹⁴⁹ Tb	None
415	¹⁸⁴ Ta, ⁸⁰ Sr, ²⁰¹ Bi, ²¹² Pb, ¹⁰⁹ Pd, ^{111m} Pd, ¹⁵³ Dy, ¹⁶⁴ Yb, ^{154m} Tb, ¹³¹ La, ^{197m} Pb	None
658	^{202m} Pb, ¹⁴⁵ Pr, ¹¹⁰ In, ²⁰⁷ At, ^{99m} Rh, ^{250m} Es, ¹⁵³ Dy	None

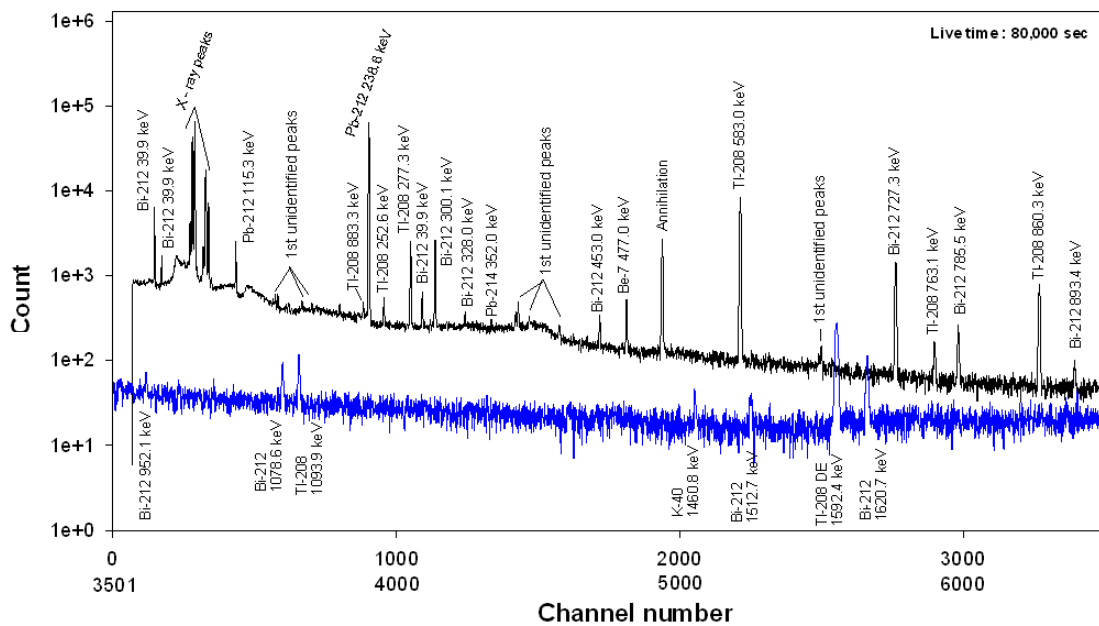


Fig. 4. The gamma ray energy spectrum from the air sample using the HPGe gamma spectrometry system (first nuclide identification).

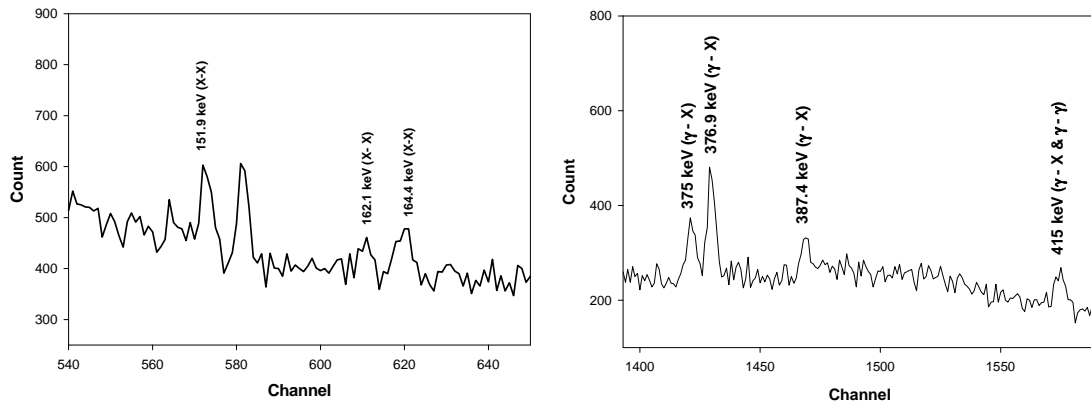


Fig. 5. X-X, γ -X or γ - γ cascade coincidence summing peaks from ^{212}Pb .

3.2 핵자료를 이용한 피이크의 원인규명 결과

^{212}Pb 는 ^{212}Bi 의 여기상태(excited state)로 붕괴하여 감마선이 된다. 이때, γ -ray와 γ -ray (γ - γ)에 의한 또는 γ -ray와 내부전환전자에 의해 발생하는 특성 X-ray (γ -X)에 의한 축차우연동시합성피이크가 생성된다. ^{212}Pb 는 단반감기의 방사성핵종이므로 공기 중 ^{220}Rn 의 농도가 높지 않거나 또는 시료채취 후 장시간 방치하였을 경우, 축차우연동시합성피이크는 보이지 않을 수 있다. 단, 반감기가 긴 모핵종이 없을 경우 ^{220}Rn 계열의 딸핵종들인 ^{212}Pb 에 비해 ^{208}Tl 의 반감기가 짧기 때문에 전처리 과정에서 상당수 붕괴되어 ^{208}Tl 축차우연동시합성피이크는 나타나지 않을 수 있다. ^{212}Pb 의 300 keV와 115.2 keV는 10 ps 이내로 축차 천이 된다. 따라서 계측기와 시료간의 거리가 작을 경우, 300 keV와 115.2 keV의 γ -X와 γ - γ 에 의한 축차우연동시합성효과에 의한 375 keV, 376.9 keV, 387.4 keV, 415 keV의 에너지대에 합성피이크가 보이게 된다. 또한, ^{212}Pb 의 74.8 keV, 77.1 keV, 87.3 keV의 X-ray에 의해 X-X 축차우연동시합성 효과가 발생하며 151.9 keV, 162.1 keV, 164.4 keV에서 합성 피이크가 나타난다.

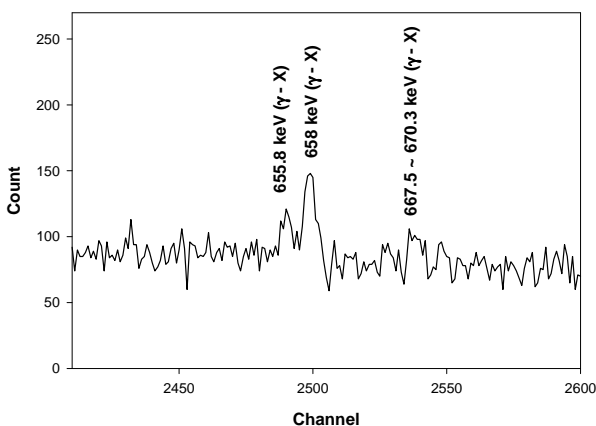


Fig. 6. γ -X cascade summing peaks from ^{208}Tl .

Table 4. The Nuclide Identification Results for the Gamma Ray Energy Spectrum from the Air Sample.

Energy (keV)	Nuclide	Source
151.9	^{212}Pb	X-X
162.1	^{212}Pb	X-X
375	^{212}Pb	X-X
376.9	^{212}Pb	γ -X
387.4	^{212}Pb	γ -X
415	^{212}Pb	γ -X and γ - γ
655.8	^{208}Tl	γ -X
658	^{208}Tl	γ -X
667.5	^{208}Tl	γ -X
668	^{208}Tl	γ -X
670.3	^{208}Tl	γ -X

Fig. 5는 ^{212}Pb 에 의한 축차우연동시합성 피이크들을 보여준다. ^{208}Tl 은 내부전환전자에 의해 72.8 keV, 75.0 keV, 84.5 keV, 84.9 keV, 87.3 keV의 KX-ray를 방출하며 여러 에너지대에서 축차천이 된다. 또한 583 keV의 감마선은 294 ps로 4개의 에너지준위에 대해서 축차천이되며 KX-ray와 γ -X 축차우연동시합성효과에 의한 피이크들을 발생시킨다. 그 효과에 의한 full energy photoelectric peaks는 655.8 keV, 658 keV와 667.5 keV, 668 keV, 670.3 keV의 에너지를 갖는다.

Fig. 6은 ^{208}Tl 의 감마선과 X-ray에 의한 축차우연동시합성 피이크들을 보인다. Table 4는 1차 핵종판별 과정에서 확인되지 않은 피이크들에 대하여 축차우연동시합성 피이크 조사에 의한 핵종판별결과를 보여준다.

반감기 계산과 공기부유진 시료내에 존재하는 자연방사성핵종으로부터 기인되는 피이크들을 조사한 결과 핵자료에 의한 1차 핵종판별 후 미확인 피이크로 구분된 것들은 ^{212}Pb 와 ^{208}Tl 의 축차우연동시합성 피이크들임을 확인하였다.

4. 결 론

비상시 환경방사능 모니터링을 위해 24시간 동안 포집된 공기부유진 시료로부터 얻어진 감마선에너지 스펙트럼에 대한 핵종판별 방법을 소개하였으며, 핵종판별 자료를 산출하였다. 소개된 반감기 계산에 의한 핵종판별방법은 단반감기 핵종에 대한 비상시 방사능 모니터링 방법으로써 유용하게 적용될 수 있을 것이며 프로그램 개발을 통하여 보편화 될 수 있을 것이다. 또한 공기부유진에 대한 감마선에너지 스펙트럼 규명결과는 자연방사성핵종분 석을 위한 기본 자료로써 활용될 수 있을 것이다.

비상시 효율적인 방사능 모니터링을 위한 신속하고 정확한 핵종판별을 위해서는 일반적으로 관찰되지 않는 감마선에너지 피이크에 대한 정보들이 활용되어야 하며 충분한 데이터 베이스가 구축되어야 할 것이다.

참고문헌

1. International Atomic Energy Agency. Environmental and Source Monitoring for Purposes of Radiation Protection. Safety Guide No. RS-G-1.8. IAEA. Vienna. 2005.
2. Idaho National Engineering & Environmental Laboratory. Gamma-Ray Spectrum Catalogue. Fourth Edition. 1998.
3. Idaho National Engineering & Environmental Laboratory. Scintillation Spectrometry gamma-ray spectrum catalogue. Reissue of IDO-16880 2nd Edition 1997.
4. Firestone RB, Shirley VS. (Eds.), Table of Isotopes. 8th ed. New York; Wiley-Interscience. 1996.

Nuclide Identification of Gamma Ray Energy Peaks from an Air Sample for the Emergency Radiation Monitoring

Jong-In Byun^{*}, Seok-Won Yoon^{*}, Hee-Yeoul Choi[†], Seong A Yim[†], Dong-Myung Lee^{*†}, Ju-Yong Yun^{*†}

^{*}University of Science and Technology

[†]Korea Institute of Nuclear Safety

Abstract - For the emergency radiation monitoring using gamma spectrometry, we should sufficiently survey the background spectra as environmental samples with systematic nuclide identification method. In this study, we obtained the gamma ray energy spectrum using a HPGe gamma spectrometry system from an air sample. And we identified nuclide of the gamma ray energy peaks in the spectrum using two methods - 1) Half life calculation and 2) survey for cascade coincidence summing peaks using nuclear data. As the results, we produced the nuclide identification results for the air sample.

Keywords : Air Sample, Gamma Ray Energy Spectrum, Nuclide Identification